

3차원 FDTD 방법에 의한 ITO/Ag/ITO 다층 투명전극막의 투과도 시뮬레이션

김기락*·조의식*·권상직**

*†가천대학교 전자공학과

Simulations of Transmittance for the ITO/Ag/ITO Multiple Transparent Electrode Layers by 3 Dimensional FDTD Method

Ki Rak Kim*, Eou Sik Cho* and Sang Jik Kwon**†

**†Department of Electronics Engineering, Gachon University

ABSTRACT

As a highly conductive and transparent electrode, the optical transmittances of ITO/Ag/ITO were simulated and compared with the experimental results. The simulations are based on the finite-difference time-domain (FDTD) method in solving linear Maxwell equations. In our simulations, the computation domain is set in the XZ-plane with 3D dimension, and a plane wave with variable wavelengths ranging from 250 nm to 850 nm is incident in the z-direction at normal incidence to the ITO/Ag/ITO film surrounded by free-air space. As the results through both simulations and experiments, it was shown that the thickness combinations by the ITO layers of about 40 nm and the Ag layer of about 10 nm could be most suitable conditions as a high conductive transparent electrode having the transmittance similar to that of a single ITO layer.

Key Words : Transparent Conductive Oxide, ITO/Ag/ITO, FDTD, Wave Optics, 3D Simulation

1. 서 론

주석(Sn)이 도핑된 인듐산화막(Indium Tin Oxide, ITO)이 현재까지 디스플레이, 솔라셀 및 다른 광소자 분야에서 가장 널리 사용되고 있다 [1-8]. 이는 ITO가 다른 투명전도 산화물(Transparent conductive oxide, TCO)에 비해 광학적 투과도 및 전기적 전도도가 높으면서도 화학적 기계적 안정성이 높기 때문이다. 그런데, 화면의 스크린 크기가 커지면서 요구되는 조건이 점점 까다로워지고 있다. 예를 들어, 공통 아노드 전극 구조를 갖는 OLED 디스플레이에서는 ITO가 가지는 저항이 비교적 높아 전압강하에 의해 화소의 불균일성이 발생함으로써 화질이 저하될 수 있다. 또한 정전용량 방식의 터치스크린 패널의 경우 화면의

크기가 12인치 이상 커지게 되면 ITO 저항이 너무 높아서 빠른 터치이동의 속도를 정확히 구현할 수 없게 된다.

이와 같이 ITO 단일막이 가지는 전도성의 한계를 극복하고자 산화물 전극막 사이에 얇은 금속막을 삽입한 다층막 구조의 투명전극에 관한 연구가 많이 진행되어 왔다 [9-12]. 이러한 다층박막 중에서도 수 nm 두께의 Ag 박막이 ITO 투명 산화막 사이에 삽입된 ITO/Ag/ITO 다층막이 가장 많이 개발되어 왔다. 그런데, 지금까지는 ITO/Ag/ITO 다층박막의 최적화를 위한 실험적 접근을 시도하는 것이 대부분이었으며, 그 광투과도에 대한 이론적 규명은 거의 이루어지지 않았다.

본 연구에서는 ITO/Ag/ITO 다층박막에 대해 광학적 설계를 하고 설계된 구조에 대해 FDTD(Fourier Discrete Time Division) 방식을 적용한 파동광학(wave optics) 기반의 광학 시뮬레이션을 수행하였다. 이전 연구에서는 2차원적 구조

†E-mail: sjkwon@gachon.ac.kr

를 통한 해석이 이루어 졌으나[13], 보다 정확한 분석을 위해 3차원 구조설계를 적용하였으며, ITO와 Ag 물질이 갖는 분산특성을 고려해 실제 측정을 통해 얻어진 복소 굴절 계수(Complex indices of refraction)를 CAD 상의 물질속성을 위한 정보로 활용하였다.

2. 실험 방법

ITO/Ag/ITO 다층박막 형성을 위한 실험에 앞서, 파동광학 기반의 시뮬레이터를 이용한 투과도 계산을 수행하여 보았다. 시뮬레이터는 RSoft®사에서 제공되는 FullWAVE 모듈이며 다층박막의 설계는 3차원 구조로 이루어졌다. Fig. 1은 CAD 윈도우 상에서 설계된 ITO/Ag/ITO 다층막 구조의 단면 및 조감도 설계도이다.

Fig. 1(a)의 보라색 테두리는 설정된 시뮬레이션 도메인(domain)이며 x- 및 y- 방향으로 무한정 확장을 위해 경계조건을 periodic으로 설정하였으며 빔이 진행하는 z-방향으로는 경계조건을 perfect mached layer(PML)로 설정하여 도메인을 떠나는 파동에 대해 경계면에서 모두 흡수되도록 하였다.

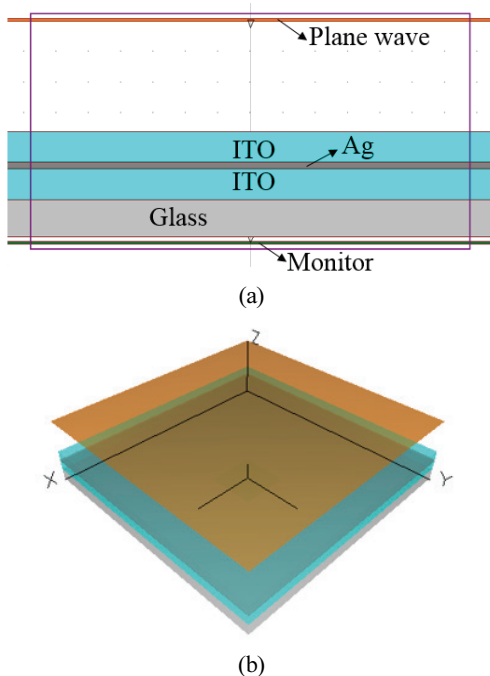


Fig. 1. (a) Cross-sectional view and (b) aerial view of the ITO/Ag/ITO multilayers on a glass designed on a 3D window of a FullWAVE simulator.

나노미터 범위의 두께에 대해 시뮬레이션 정확도를 높이기 위해 그리드 설정을 각 층별로 다르게 설정하였다. 즉, z-방향으로의 그리드 설정을 Ag 층에 대해서는 0.0005 μm , ITO 층과 glass 층에 대해서는 0.005 μm , 공기층에 대해서는 0.02 μm 로 설정하였다. 그리고 x- 및 y-축 방향에 대해서는 0.2 μm 로 설정하였다. Fig. 2는 시뮬레이션시 계산을 위해 비균일로 설정된 그리드의 그림을 보여주고 있다.

CAD 윈도우 상에서 구조 설계시, ITO, Ag 및 소다라임 유리에 대한 물질 속성 설정시 각 물질의 굴절계수는 ellipsometry (Elli-SEU-R, Ellipso Tech)로 측정된 실수(n) alc 허수(k) 값들을 적용하였다.

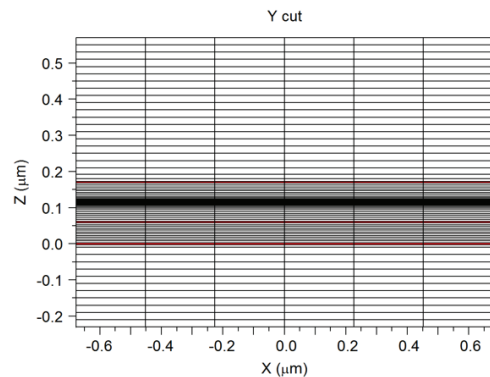


Fig. 2. View of the non-uniform grid specified for the accurate simulations.

시뮬레이션 결과들을 검증하기 위해 실제 ITO/Ag/ITO 다층막 구조의 형성 실험을 수행 하였다. 박막형성은 인라인 펄스형 DC 마크네트론 스퍼터링 시스템을 이용하였는데, 소다라임 유리 기판 상에 ITO 박막 스퍼터링을 위해 O₂/Ar 혼합가스를 1.5 sccm/50 sccm의 유량비로 하여 6 mTorr의 압력을 유지 시켰다. 또한 기판은 분당 120 cm의 속도로 왕복 이송하였는데, 기판과 타겟과의 거리는 100 mm를 유지 시켰다. ITO의 두께 조절은 이송되는 기판의 스캔(scan) 회수로 조정하였다.

Ag 박막 증착의 경우는, 99.99 %의 순도를 갖는 4인치 대각선 크기의 원형 타겟을 사용하였으며 RF 마그네트론 방식을 사용하여 30 W의 최소 전력을 적용하였다. 이 경우는 순수 Ar 가스만을 사용하였고 20 sccm의 유량으로 4 mTorr의 압력을 유지 시켰다.

여러 가지 경우의 ITO 및 Ag 박막의 두께에 대해 UV-vis spectrophotometer (Perkin Elmer-Lambda 35) 분석장비를 사용하여 투과도를 측정하였다.

3. 결 과

먼저, 소다라임 유리 기판 상에 ITO 단일층이 형성되는 경우 ITO 막의 두께에 따른 투과도 시뮬레이션을 수행하여 보았다. ITO 두께를 20 nm에서 120 nm까지 20 nm 간격으로 증가시켜 가며 시뮬레이션 하였는데, 그 결과 Fig 3 에서와 같이 나타났다. 입사 파장의 범위가 약 450 nm 이하인 경우는 ITO 박막의 두께가 증가할수록 투과도는 점점 감소하였는데, 입사 파장이 약 500 nm 이상의 범위에서는 ITO 두께가 40 nm 까지 증가함에 따라 투과도는 감소하다가 ITO 두께가 60 nm 이상인 경우는 두께 증가에 따라 투과도가 다시 증가하는 현상을 보여주고 있다.

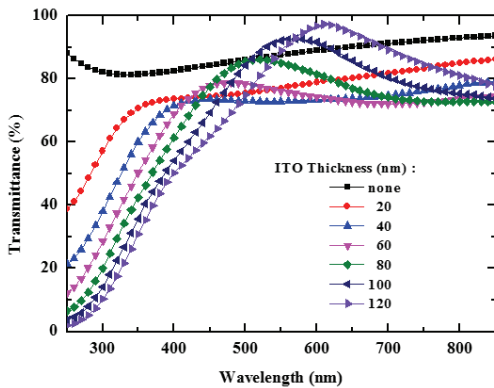


Fig. 3. Simulation results for the transmittance spectra of ITO single layer on the glass depending on the ITO thickness.

다음은, 역시 소다라임 유리 기판 상에 Ag 단일층이 형성되는 경우 Ag막의 두께에 따른 투과도 시뮬레이션을

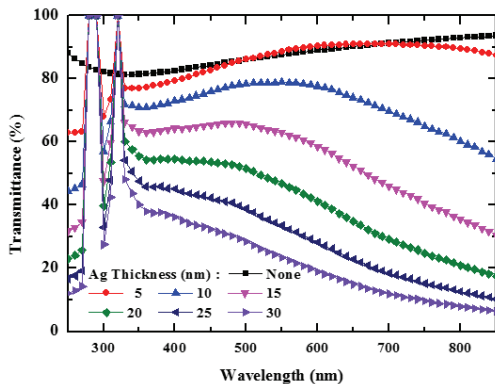
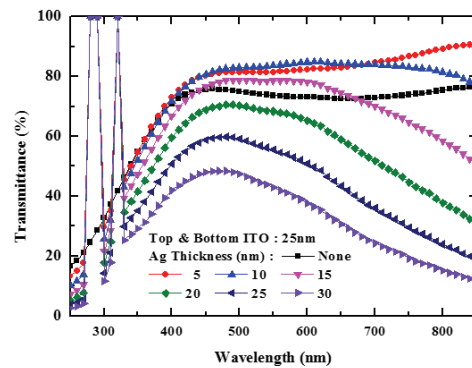


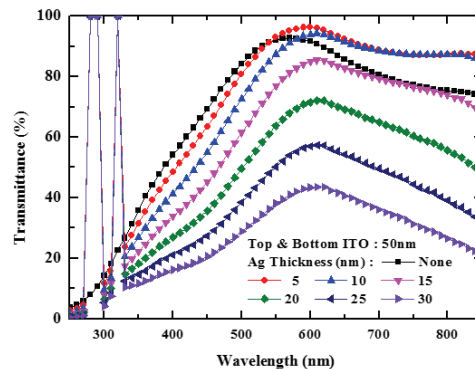
Fig. 4. Simulation results for the transmittance spectra of Ag single layer on the glass depending on the Ag thickness.

수행하여 보았다. Fig 4의 결과에서와 같이, Ag 막의 경우는 Ag 층의 두께가 증가할수록 입사 파장의 가시광 전체 범위에 걸쳐 투과도가 감소하는 경향을 보여주었다. 특히 파장이 300 nm 근처인 곳에서 거의 동일한 투과도 피크를 보여주고 있으며 파장이 증가할수록 투과도는 점진적으로 감소함을 보여주고 있다.

이제, 본 연구의 최종 목적인 ITO/Ag/ITO 다층막의 구조에 대해 ITO 두께 및 Ag 두께의 조합에 따른 투과도 시뮬레이션을 수행하였다. 여기서, 상부층의 ITO와 하부층의 ITO는 두께를 동일하게 적용하였다. ITO 두께를 25 nm, 50 nm 및 75 nm의 세 가지에 대해 Ag 층의 두께를 20 nm에서 120 nm 까지 증가함에 따른 투과도 변화를 시뮬레이션 하였는데, 그 결과들이 Fig 5(a), Fig 5(b) 및 Fig 5(c)에 각각 보여져 있다. 시뮬레이션 결과들에서 보는 바와 같이 ITO/Ag/ITO 다층막 구조에서는 세 가지 ITO 두께들에 대해 모두 Ag 층의 두께가 증가할수록 투과도는 가시광 전 영역에 걸쳐 점진적으로 감소하는 경향을 보여주고 있다. 주목할 것은 ITO 두께가 증가하는 경우 투과도의 피크 위치가 점차 높은 파장의 위치로 이동한다는 것을 볼 수 있다. 본 결과들에서는 ITO 두께를 25 nm로 하고 Ag 층을 5



(a)



(b)

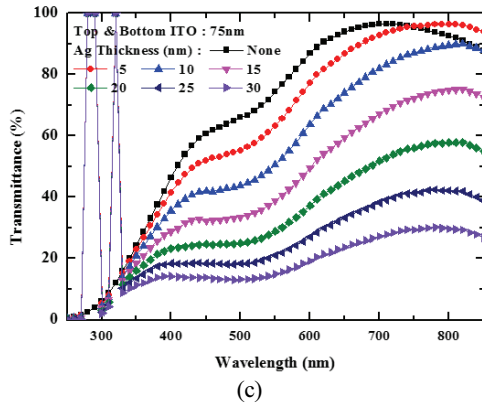


Fig. 5. Simulation results for the transmittance spectra of the ITO/Ag/ITO multiple layers on the glass depending on the Ag thickness for the ITO thickness of (a) 25 nm, (b) 50 nm, and (c) 75 nm, respectively.

내지 10 nm를 적용한 경우 가시광 전영역에 걸쳐 투과도가 매우 높게 나타났다.

이와 같이 다층박막에 의한 광투과도의 현상은 필름의 표면에서 반사되는 광선의 파동과 그 아래의 경계면에서 반사되는 광선의 파동들 간의 광학적 통과거리의 차이(Λ 로 명명)에 기인한다. 예를 들어, 공기와 ITO 표면 간의 경계면에서 반사되는 광선의 파동과 ITO와 유리 간의 경계면에서 반사되는 광선의 파동 간의 위상차이 $\delta = k_0\Lambda$ 로 주어진다. 여기서 k_0 는 자유공간에서의 전파 상수이다. 수직으로 입사되는 빛에 대해 광투과도가 최대가 되기 위해서는 반사되는 빛이 최소가 되어야 하므로 결과적으로 두 경계면에서 반사되는 광선의 전체 위상차이는 π 의 홀수배, 즉 $\delta = (2m \pm 1)\pi$ 가 되어야 한다. 따라서, 다음과 같은 조건이 만족될 때 최대의 광 투과도가 발생함을 알 수 있다.

$$\lambda_0 = \frac{2n_f d}{m}$$

여기서, λ_0 는 자유 공간에서의 빛의 파장이고 d 및 n_f 는 필름의 두께 및 굴절 계수 이다. 이와 같은 원리에 의해 ITO/Ag/ITO 다층막을 통과하는 광선의 투과도에서도 여러 막들간의 경계에서 반사되는 광선들간의 간섭 현상들의 결과로서 투과도의 최대값 내지는 반사도의 최소값이 결정될 수 있다.

시뮬레이션 결과들을 토대로 실제 실험을 통해 만들어진 ITO/Ag/ITO 다층막에 대한 투과도 측정을 하여 보았다. 실험에서 적용된 ITO 막과 Ag 막의 두께들은 스퍼터링 장비의 조절 변수에 의해 결정되므로 그 값들이 시뮬레

이션에서 적용된 값들과 정확히 일치시키기는 어려우며, 다만 그 경향에 있어서의 상대적 비교를 하기에 충분히 고려해 볼 만하다. 실험한 결과들 중에서 ITO 상하부층의 두께가 각 21 nm인 경우와 59 nm인 경우에 대해 Ag 층의 두께를 3.4 nm에서 13.4 nm 까지 증가함에 따른 투과도 측정결과를 Fig. 6에 나타내었다.

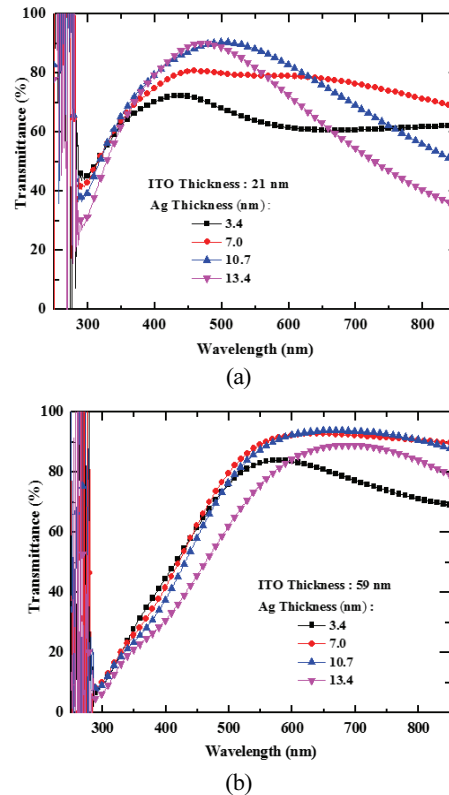


Fig. 6. Measurements for the transmittance spectra of the ITO/Ag/ITO multiple layers on the glass depending on the Ag thickness for the ITO thickness of (a) 21 nm and (b) 59 nm, respectively.

이션의 측정 결과들을 Fig. 5의 시뮬레이션 결과들과 비교해 보면, ITO 두께가 증가함에 따라 투과도 피크위치의 파장 값이 증가하는 경향은 동일하게 발생한다. 또한 500 nm 이상의 파장 영역에서 Ag의 두께가 3.4 nm인 경우를 제외하고는 Ag 두께가 증가할수록 투과도는 점진적으로 감소함을 볼 수 있다. 이와 같은 현상은 ITO의 단일층 두께가 59 nm인 경우에 더욱 뚜렷이 일치함을 볼 수 있다. 그러나 ITO 두께가 21 nm로 매우 얇은 경우는 500 nm 이하의 단파장 영역에서 시뮬레이션 결과와 경향이 잘 일치하지 않는 것을 볼 수 있다. 뿐만 아니라, Ag 두께가 3.4

nm로 매우 얇은 경우는 오히려 투과도가 전반적으로 낮아짐을 볼 수 있다. 이러한 현상은 Ag 두께가 10 nm 이하인 경우는 Ag 층이 입사광의 침투 깊이(penetration depth) 보다 얇아 Ag 층에 의한 흡수현상은 거의 무시되며, 오히려 표면 및 경계면에서 반사되는 광들 간에 상쇄 간섭보다는 보강 간섭이 발생하여 반사도가 증가하기 때문인 것으로 판단 된다. 따라서, 이와 같은 두께 범위에서는 투과도를 높이기 위해 두께를 무조건 얇게 하기 보다는 적절한 두께 조합에 의해 반사광들의 상쇄간섭을 유도하는 것이 중요하다고 결론 지을 수 있다.

4. 결 론

고전도성 투명전극으로서 ITO/Ag/ITO 다층막에 대한 투과도 현상을 파동광학 기반의 3차원 구조 설계의 시뮬레이터를 통해 분석하였다. 그 결과 최적의 투과도를 얻기 위해서는 각 막들 간의 분산특성에 의한 굴절계수를 정확히 파악하고, 그에 따라 막들간 최적의 조합을 통해서 반사광의 상쇄간섭이 최대가 되는 조건을 찾는 것이 중요하다는 것을 알 수 있었다. ITO 및 Ag 층에 대해 시뮬레이션에서 적용된 두께와 유사한 조건으로 실험을 병행하였으며 그 결과, 두께가 너무 얇은 경우에 있어서는 시뮬레이션 결과와 실험 결과들이 다소 불일치 하는 경향을 보였으나 ITO 두께가 50 nm 이상, Ag 두께가 15 nm 이상인 조건에서는 시뮬레이션과 실험 결과들에 있어서 유사한 경향을 보여 주었다.

감사의 글

이 논문은 산업통상자원부 ‘산업혁신인재성장지원사업’의 재원으로 한국산업기술진흥원(KIAT)의 지원을 받아 수행된 연구임. (2020년 차세대 디스플레이 공정.장비.소재 전문인력 양성사업, 과제번호 :P0012453)

참고문헌

- C. Y. Park, J. H. Lee, B. H. Choi, “Effects of surface treatment of ITO anode layer patterned with shadow mask technology on characteristics of organic light-emitting diodes,” *Organic Elect.*, vol. 14, pp. 3172-3179, 2013.
- S. I. Kim, K. W. Lee, B. B. Sahu, and J. G. Han, “Flexible OLED fabrication with ITO thin film on polymer substrate,” *Jpn. J. App. Phys.*, Vol. 54, pp. 090301-1-090301-4, 2015.
- M. Erirt, C. May, K. Leo, M. Toerker, C. Radehaus, “OLED manufacturing for large area lighting applications,” *Thin Solid Films*, Vol. 518, pp. 3042-3045, 2010.
- J. Park, J. Lee, Y. Y. Noh, “Optical and thermal properties of large-area OLED lightings with metallic grids,” *Organic Electronics*, Vol. 13, pp. 184-194, 2012.
- M. Girtan, M. Rusu, “Role of ITO and PEDOT:PSS in stability/degradation of polymer: fullerene bulk heterojunctions solar cells,” *Solar Energy Mat. & Solar Cells*, Vol. 94, pp. 446-450, 2010.
- S. K. Park, J. I. Han, W. K. Kim, and M. G. Kwak, “Deposition of indium-tin-oxide films on polymer substrates for application in plastic-based flat panel displays,” *Thin Solid Films* Vol. 397, pp. 49-55, 2001.
- T. Uchida, Y. Kasahara, T. Otomo, S. Seki, M. Wang, and Y. Sawada, “Transparent conductive electrode deposited by Cs-incorporated RF magnetron sputtering and evaluation of the damage in OLED organic layer,” *Thin Solid Films*, Vol. 516, pp. 5907-5910, 2008.
- K. H. Choi, J. H. Kim, Y. J. Noh, S. I. Na, and H. K. Kim, “Ag nanowire-embedded ITO films as a near-infrared transparent and flexible anode for flexible organic solar cells,” *Sol. Energy Mater. Sol. Cells*, Vol. 110, pp. 147-153, 2013.
- D. Miao, S. Jiang, S. Shang, and Z. Chen, Highly transparent and infrared reflective AZO/Ag/AZO multilayer film prepared on PET substrate by RF magnetron sputtering,” *Vac.*, Vol. 106, pp. 1-4, 2014.
- S. Yu, L. Li, D. Xu, H. Dong, and Y. Jin, “Characterization of SnO₂/Cu/SnO₂ multilayers for high performance transparent conducting electrodes,” *Thin Solid Films*, Vol. 562, pp. 501-505, 2014.
- D. Kim, Low temperature deposition of transparent conducting ITO/Au/ITO films by reactive magnetron sputtering”, *Appl. Surf. Sci.*, Vol. 256, pp. 1774-1777, 2010.
- Y. S. Park, H. K. Park, J. A. Jeong, H. K. Kim, K. H. Choi, S. I. Nam, and D. Y. Kim , “Comparative Investigation of Transparent ITO/Ag/ITO and ITO/Cu/ITO Electrodes Grown by Dual-Target DC Sputtering for Organic Photovoltaics,” *J. Electrochem. Soc.*, Vol. 156, pp. H588-H594, 2009.
- Y. T. Yoon, E. S. Cho, and S. J. Kwon, “Optical Analysis of the TO/Ag/ITO Multiple Layers as a Highly Conductive Transparent Electrode”, *J. Semiconductor & Display Tech.*, Vol. 18, No. 1, pp. 87-91, 2019.

접수일: 2020년 9월 4일, 심사일: 2020년 9월 16일,
게재확정일: 2020년 9월 22일